

Publication number : 2001-330840

Date of publication of application : 30.11.2001

Int.Cl. G02F 1/1341 G02F 1/1339

5

Application number : 2000-146429

Applicant : TOSHIBA CORP

Date of filing : 18.05.2000

Inventor :

10 OGINO HISAAKI

TAKASE TAKESHI

METHOD FOR MANUFACTURING LIQUID CRYSTAL DISPLAY ELEMENT

15 [Abstract]

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve the display quality of a liquid crystal display element by preventing vacuum space from remaining in a liquid crystal cell due to uneven spreading of a liquid crystal in a sealing step of the liquid crystal with a dripping method.

20 SOLUTION: A sealant 14 is applied on an array substrate 11. Subsequently the liquid crystal 17 is dripped and applied to the inside of a pixel area [A] surrounded by the sealant 14 like a thin film with a slit squeegee device 25. Then under the reduced pressure the array substrate 11 and a counter substrate 12 are stuck to each other. Subsequently the liquid crystal 17 is uniformly sealed in the liquid
25 crystal cell without making the vacuum space remain therein by returning the

pressure to the atmospheric pressure.

[Claim(s)]

[Claim 1] A method for manufacturing a liquid crystal display element comprising:

- a first process of applying a sealant for sealing a liquid crystal to one of a pair of
- 5 substrates which are oppositely arranged to each other;
- a second process of dropping the liquid crystal in a state of a thin film in an area surrounded by the sealant in one of the pair of substrates;
- a third process of bonding the pair of substrates with the sealant such that a predetermined gap can be maintained between the substrates under reduced
- 10 pressure after the second process is completed; and
- a fourth process of curing the sealant after the third process is completed.

[Claim 2] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to claim 1, wherein the second process is performed using an applying device of an ink jet type.

15 [Claim 3] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to claim 1, wherein the second process is performed using an applying device which is formed in a shape of a squeegee having a ditch which is formed in

a shape of a slit.

[Claim 4] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 3, wherein an amount of applying the liquid crystal in a state of a thin film is $\pm 3\%$ (of a predetermined amount of applying the liquid crystal).

[Claim 5] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 4, wherein a range of applying the liquid crystal in a state of a thin film in the second process is equally spaced with a predetermined width from an inner side of the sealant.

10 [Claim 6] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 5, wherein the sealant applied in the first process is an ultraviolet curing sealant.

[Claim 7] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 5, wherein the sealant applied in the first process is a heat curing sealant.

[Claim 8] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 5, wherein the sealant applied in the first process is a sealant that requires both of the ultraviolet curing and the heat curing

sealants.

[Claim 9] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 8, wherein the predetermined gap in the third process is maintained by spacers which are formed in a shape of a sphere and
5 arranged separately between the pair of the substrates.

[Claim 10] The method for manufacturing a liquid crystal display element according to any one of claims 1 to 8, wherein the predetermined gap in the third process is maintained by spacers which are formed in a shape of a column and formed on one of the pair of the substrates using photolithography process.

[Title of the Invention]

METHOD FOR MANUFACTURING A LIQUID CRYSTAL DISPLAY ELEMENT

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention]

5 The present invention relates to a method for manufacturing a liquid crystal display element.

[Description of the Prior Art]

 In a liquid crystal display element which is fabricated by sealing a liquid crystal between a pair of substrates having electrodes, as a method for sealing a liquid crystal in prior art, there have been applied an injection method wherein a pair of substrates are bonded to each other by a sealant, a liquid crystal cell is assembled, a liquid crystal is injected from an injection hole formed with a sealant, and then the injection hole is sealed by an adhesive or the like, and, as shown in Fig. 10, a dripping method wherein a seal pattern 2 having no injection hole with a sealant is formed on either one of the substrates 1, a predetermined liquid crystal 3 is dropped in a form of water drop on an area surrounded by the sealant, a spacer is interposed between the one substrate 1 and the other substrate 4, bonded to

each other under the reduced pressure such that a bubble does not remain in the liquid crystal cell, and then, the seal pattern 2 is cured.

[Problem to be Solved by the Invention]

5 In the injection method, since a liquid crystal was injected into a narrow injection hole in a substrate after the substrates are bonded and a liquid crystal cell was formed, there have been problems that a long time was required from the curing of a sealant to the completion of injection of a liquid crystal, and its productivity was significantly lowered. Furthermore, since the injection hole was sealed by the sealant after the liquid crystal was injected, there has been a problem
10 that an unusual point was occurred in a liquid crystal display element near the injection hole whereby it became a cause of fine charcoal and the quality of display was deteriorated. In addition, in case that the adhesive property of an adhesive is poor, there has been a problem that a peeling was happened and bubble was generated upon sealing.

15 For this reason, in recent years, a method of sealing a liquid crystal according to a dropping method has been considered. The dropping method comprises, in the manufacturing process thereof, dropping a liquid crystal with water droplet on one of the two substrates, bonding the one substrate and a

substrate opposed thereto in vacuum, and returning the two substrates under the circumstance of atmospheric pressure. Consequently, since the liquid crystal dropped with water droplet may be spread in the liquid crystal cell by means of a difference of the pressure between inside and outside of the liquid crystal cell, the neighboring liquid crystal is contacted to each other and fill a vacuum space whereby the liquid crystal is uniformly sealed in the liquid crystal cell.

However, generally in the dropping method, since a difference of the pressure between inside and outside of the liquid crystal cell is big when the substrates are returned from a circumstance of vacuum to a circumstance of atmospheric pressure, the liquid crystal is easily spread but if the vacuum space in the liquid crystal cell is filled with the spread liquid crystal, a volume of vacuum in the liquid crystal cell will be reduced and a degree of vacuum will be decreased. Thus, since a difference of the pressure with atmospheric pressure is lowered, a force that the liquid crystal can be spread is gradually weakened. For this reason, a liquid crystal would not spread up to a farthest point that the neighboring liquid crystal can be contacted to each other, a phenomenon that a vacuum space still remains is occurred, and thus, a poor display space was produced. Thus, a problem that the uniform and good quality of display cannot be attained has arisen.

Accordingly, the present invention is intended to eliminate the above-

mentioned problem. It is an object to the present invention to provide a method for manufacturing a liquid crystal display element wherein, in a liquid crystal cell upon sealing of a liquid crystal by means of a dropping method, a vacuum space in which a liquid crystal is not present is not provided, and it is possible to attain the uniform
5 and good quality of display over entire surfaces of the display area thereby enabling a sealing process of a liquid crystal to be realized by means of a dropping method by which a time of manufacturing a liquid crystal display element can be reduced.

[Means for Solving the Problem]

10 In order to solve the above-mentioned problem, the present invention provides a method for manufacturing a liquid crystal display element comprising: a first process of applying a sealant for sealing a liquid crystal to one of a pair of substrates which are oppositely arranged to each other; a second process of dropping the liquid crystal in a state of a thin film in an area surrounded by the
15 sealant in one of the pair of substrates; a third process of bonding the pair of substrates with the sealant such that a predetermined gap between the substrates is maintained under reduced pressure after the second process is completed; and a fourth process of curing the sealant after the third process is completed.

According to the technical constitution, the present invention can prevent a

vacuum space from remaining in a liquid crystal cell upon sealing of a liquid crystal and attain the good quality of display thereby enabling a sealing of a liquid crystal to be realized with a dropping method. Thus, a time of manufacturing a liquid crystal display element can be reduced and an improvement in a production thereof can
5 be achieved.

[Embodiment of the Invention]

The present invention will be described below with reference to a first embodiment shown in Figs. 1-4. Reference numeral 10 designates a liquid crystal display element, and the liquid crystal display element comprises an array substrate
10 11 and an opposing substrate 12 in which a pixel electrode (not shown) and an opposing electrode (not shown) are arranged, respectively. After performing rubbing treatment of each of oriented films 13 arranged on the substrates, the liquid crystal display element is manufactured by bonding the substrates with a sealant 14 made of, for example, an ultraviolet curing resin or the like so as to provide a
15 predetermined gap therebetween by spacers 16, and sealing a liquid crystal in an area surrounded by the sealant 14.

Next, a method for manufacturing the liquid crystal display element 10 will be described. For example, after forming an array substrate 11 having a pixel area [A] of 13.3 inches having a pixel electrode and an opposing substrate 12

having an opposing electrode, for example, a polyimide is applied on each of the substrates, an oriented film 13 is heated at high temperature so as to have a thickness of 1,000 Å by performing a heat treatment at 250°C for 30 minutes, and rubbing treatment is performed in a predetermined direction with a rubbing cloth
5 after cooling.

Then, a ultraviolet curing sealant 14 made from acryl or the like is applied on one of the substrates, for example, by a syringe so as to surround a pixel area [A] within a cross sectional area of a range of 5,000 to 10,000 μm^2 in an array substrate 11, and a bank formed in a shape of a frame is provided. Meanwhile, for
10 example, the spacers 16 with $\Phi 5\mu\text{m}$ for maintaining a gap between the array substrate 11 and the opposing substrate 12 with a regular gap width are arranged in 200 / mm^2 in the opposing substrate 12.

Then, a liquid crystal 17 is dropped and applied in a state of a thin film on the pixel area [A] surround by the sealant 14 in the array substrate 11. The
15 dropping application is performed, for example, by a squeegee 26 where a slit (not shown) is arranged by a slit squeegee device 25 shown in Fig. 3. In the squeegee 26, the slit has a width of 180 μm and a hole 27 has a width of 10 μm . The liquid crystal is applied to a liquid crystal inlet 28 in a constant pressure, a gap between the array substrate 11 and a lower end of the squeegee 26 is measured by a gap

sensor 30 and the gap is controlled to be constant.

When the liquid crystal 17 is dropped, the array substrate 11 is arranged on a XY stage, which is not shown on the drawings, and the liquid crystal is discharged to set a liquid discharge rate from the squeegee 26 to $0.03 \text{ cm}^3/\text{sec}$ and an injection velocity of the XY stage to 2 cm/sec . As a result, the thickness of film of a liquid crystal 17 to be dropped on the array substrate 11 is about $6.6 \text{ }\mu\text{m}$. The thickness of film of a liquid crystal 17 in a state of a thin film is about $\pm 2\%$.

A total amount of the liquid crystal to be dropped is determined according to a dimension of the pixel area [A] and the gap between the array substrate 11 and the opposing substrate 12 constituting the liquid crystal cell. For example, an objective value of a total amount for applying the liquid crystal 17 is 280 ml when the pixel area [A] is 13.3 inches and the gap between the two substrates is $5 \text{ }\mu\text{m}$. In this case, a total amount of the liquid crystal dropped substantially is ideal to be set within $\pm 3\%$ of the objective value.

If a total amount of the liquid crystal to be substantially dropped is more than 3% of the objective value, when the array substrate 11 and the opposing substrate 12 are bonded under a state of vacuum and returned to an atmospheric pressure, and then, the two substrates 11, 12 are compressed so as to provide a prescribed gap between the two substrates, the liquid crystal 17 will be caused to

be filled in the liquid cell surrounded by the sealant 14 before reaching the height of the spacer 16. Moreover, since the sealant 14 is still not cured, the liquid crystal 17 breaks down the bank formed by the sealant 14 and overflows to the outside. For this reason, when the sealant 14 is cured, the assembling strength of the liquid
5 crystal cell is considerably deteriorated due to a poor adhesion of a portion where the liquid crystal 17 overflows and thus, its reliability is lowered.

On the other hand, if a total amount of the liquid crystal to be substantially dropped is less than 3% of the objective value, when the array substrate 11 and the opposing substrate 12 is bonded under a state of vacuum and returned to an
10 atmospheric pressure, and then, the two substrates 11, 12 are compressed so as to provide a prescribed gap between the two substrates, a liquid crystal to be filled in an inner space of the liquid crystal cell surrounded by the sealant 14 will be not sufficient. As a result, a vacuum space, which is not filled with the liquid crystal 17 between the two substrates 11, 13, remains in the pixel area [A] of the liquid crystal
15 display element 10 finally completed, and thus, a remarkable display poorness may be caused.

Since a thickness of a film is not stable in an end portion of a periphery of the liquid crystal 17 which is dropped and applied in a state of a thinner film, and the film is slowly cut, the liquid crystal 17 is dropped and applied in a state of a thin

film such that an end of the liquid crystal is positioned to have a distance of 10 mm from the sealant 14 formed on the array substrate 11.

Consequently, a thickness of the thin film is about 6.6 μm , a size of the thin film is about 183 mm in a vertical direction and about 230 mm in a horizontal
5 direction.

Like this, the liquid crystal 17 is dropped on the array substrate 11 in a state of a thin film, the two substrates are bonded by an assembling apparatus 40 under a condition that the spacers 16 are arranged apart to each other, and then, the liquid crystal display element 10 is assembled. That is, in a vacuum chamber at 1
10 Torr, the array substrate 11 is absorbed on a lower stage 42 which is adjustable in XYZ directions, the opposing substrate 12 is absorbed on a upper stage 43 which is adjustable in XYZ directions, and the upper and lower stages 42, 43 are moved and aligned under a condition that the two substrates 11, 12 are spaced apart to each other. Next, the two substrates 11, 12 are compressed under the pressure of
15 40 kgf, and are bonded to each other.

Thereafter, if the two bonded substrates 11, 12 are returned to the atmosphere, the liquid crystal 17 is spread and filled in a vacuum space of the liquid crystal cell due to a difference of the pressure between inside and outside of the liquid crystal cell. Then, the two substrates 11, 12 are compressed at about 300

kgf so that the prescribed width of the gap therebetween is 5 μm , the sealant 14 is cured with irradiating ultraviolet ray with about 3,000 mJ/cm^2 by an ultraviolet irradiating lamp 42a equipped in the lower stage 42 for curing the sealant 14, and the liquid crystal display element 10 is accomplished.

5 According to the manufacturing method, in sealing the liquid crystal by means of a dropping method, when the array substrate 11 and the opposing substrate 12 are bonded under the reduced pressure and returned to atmosphere, the vacuum space does not remain in the liquid crystal cell and the liquid crystal 17 is uniformly spread in the liquid crystal cell, thereby obtaining the liquid crystal
10 display element 10 having a good quality of display. Therefore, this enables a sealing of a liquid crystal by means of a dropping method to be realized whereby a time of manufacturing a liquid crystal display element can be reduced and an improvement in the production thereof can be achieved.

Next, the present invention will be described below with reference to a
15 second embodiment shown in Fig. 5. The second embodiment illustrates performance of a dropping of the liquid crystal to the array substrate by a method of ink jet as compared with the first embodiment. Since the other points thereof are equal to those of the first embodiment, the same reference numerals are used with respect to the same elements and their descriptions will be omitted.

In the present embodiment, a dropping application of the liquid crystal 17 in a state of a thin film into a pixel area [A] surround by the sealant 14 in the array substrate 11 is carried out by a liquid crystal applying head 18, which is composed of a type of an ink jet. The liquid crystal applying head 18 is constructed such that
5 a piezo element 21 in a nozzle block 20 is fixed to an upper portion of a spring 22 which is formed in a shape of a plate spring. The liquid crystal 17 is injected into a liquid crystal inlet 23 positioned in a space below the spring 22 in the nozzle block 20, and is discharged to a nozzle hole 24 by vibrating the piezo element 21.

In the liquid crystal applying head 18 used above, a diameter of the nozzle
10 hole 24 is 50 μm , 70 lines having a pitch of 200 μm are provided, and a width of application is about 14 mm. The liquid crystal 17 can be sprayed by applying a voltage of 1,000 mV and a frequency of 50 Hz to the piezo element 21 of the liquid crystal applying head 18. Upon dropping of the liquid crystal 17, the array substrate 11 applied with the sealant 14 is arranged on a XY stage, which is not
15 shown in the drawings, the liquid crystal 17 is sprayed from the liquid crystal applying head 18 while the XY stage is injected, and a dropping application of the liquid crystal 17 in a state of a thin film on the array substrate 11 is carried out. If the injection velocity of the XY stage is, for example, 50 mm/sec, a thickness of film of the liquid crystal 17 to be dropped on the array substrate 11 is about 6.7 μm , and
20 thus, the desired dropping amount of the liquid crystal 17 can be obtained.

Like the first embodiment, if the array substrate 11 and the opposing substrate 12 are compressed and bonded under the pressure of 40 kgf, and the two bonded substrates 11, 12 are returned to the atmosphere, in a vacuum chamber at 1 Torr by means of the assembling device 40, the liquid crystal 17 can
5 be spread without leaving a vacuum space due to a difference of the pressure between inside and outside of the liquid crystal cell. Then, the two substrates 11, 12 are compressed at about 300 kgf, the sealant 14 is cured by irradiating ultraviolet ray with about 3,000 mJ/cm², and the liquid crystal display element 10 is accomplished.

10 According to the manufacturing method, like the first embodiment, in sealing the liquid crystal by means of a dropping method, the vacuum space does not remain in the liquid crystal cell and the liquid crystal 17 is uniformly spread in the liquid crystal cell, thereby obtaining the liquid crystal display element 10 having a good quality of display. Therefore, this enables a sealing of a liquid crystal by
15 means of a dropping method to be realized.

Next, the present invention will be described with reference to a third embodiment shown in Figs. 6-8. The third embodiment illustrates forming and bonding of the array substrate and the opposing substrate having two surfaces on the glass substrate, respectively, as compared with the first embodiment. When

the array substrate and the opposing substrate are bonded to each other, a plurality of additional pressures is simultaneously applied to the same plane of the substrate. Since the other points thereof are equal to those of the first embodiment, the same reference numerals are used with respect to the same elements and their
5 descriptions will be omitted.

In the third embodiment, a film forming method and a photolithography method are repeated, for example, on a mother glass substrate 51 of 300 x 300 x 0.7 mm, and two array substrates 52 having pixel electrodes (not shown) with a matrix field of 320 x 240 dot are formed while two opposing substrates 54 (not
10 shown) formed in a shape of a plane are formed on a mother glass substrate 51 of 300 x 300 x 0.7 mm. In addition, for example, a polyimide is applied on the array substrate 52 and the opposing substrate 54, an oriented film (not shown) is baked at high temperature so as to have a thickness of 1,000 Å by performing a heat treatment at 250°C for 30 minutes, and a rubbing treatment is performed after
15 cooling.

Then, on one of the substrates, for example, on the array substrate 52, an ultraviolet curing sealant 56 made from, for example, acryl is applied by, for example, a syringe to surround a pixel area [B] and constitutes a bank having a shape of a frame. Meanwhile, on the opposing substrate 54, for example, spacers

16 with $\Phi 5\mu\text{m}$ for maintaining a prescribed gap between the array substrate 52 and the opposing substrate 54 by a regular gap width are arranged with $200 / \text{mm}^2$.

Next, a squeegee 26 is used as in the first embodiment, a liquid crystal 57 is dropped and applied on the pixel area [B] surrounded by a sealant 56 in the array substrate 52 in a state of a thin film having a thickness of about $6.6 \mu\text{m}$. Meanwhile, the two mother glass substrates 51, 53 are bonded by an assembling apparatus 31 shown in Fig. 7 under a condition that spacers 16 are arranged apart in the opposing substrate 54, the sealant 56 is cured, the substrates are taken off by one surface, and the liquid crystal display element 58 is assembled.

10 The assembling apparatus 31 includes a lower stage 33 which is adjustable in XYZ directions in a vacuum chamber and absorbs the mother glass substrate 51 in vacuum, and an upper stage 34 which is adjustable in XYZ directions in a vacuum chamber and absorbs the mother glass substrate 53 in vacuum. An ultraviolet irradiating lamp 36 is equipped in the lower stage 33.

15 The upper stage 34 is comprised of a double frame structure including a first range of compression stage 37 for pressing an area corresponding to the sealant 56, and a second range of compression stage 38 for pressing an area defining a periphery of the first range of compression stage 37 and positioned at an outside of the sealant 56. The first range of compression stage 37 and the second range of

compression stage 38 may be pressed by different pressures, respectively. Consequently, upon being pressed, the mother glass substrates 51, 53 are constituted such that both the pressing by the first range of compression stage 37 and the pressing by the second range of compression stage 38 are simultaneously applied.

When the liquid crystal display element 58 is assembled, in a vacuum chamber 32 at 1 Torr, the mother glass substrate 51 is absorbed in vacuum on a lower stage 33 while the mother glass substrate 53 is absorbed in vacuum on an upper stage 34, and the upper and lower stages 33, 34 are moved and aligned under a condition that the two substrates 51, 53 are spaced apart to each other. Thereafter, when the two substrates 51, 53 are bonded and the bonded substrates are returned to the atmosphere, the liquid crystal 57 is spread and filled in a vacuum space of the liquid crystal cell due to a difference of the pressure between inside and outside of the liquid crystal cell.

Then, for example, an area of the sealant 56 is pressed with a pressure of 0.5 kg/cm^2 by the first range of compression stage 37, an area of the sealant 56 is pressed with a pressure of 1 kg/cm^2 by the second range of compression stage 38, an ultraviolet ray is irradiated in 2000 mJ/cm^2 by a ultraviolet irradiating lamp 36 and the sealant 56 is cured. The liquid crystal display element 58 is accomplished

so that the mother glass substrates 51, 53 are cut in a half thereof and separated from each other to provide a mother glass substrate 58 having one surface, respectively.

As a result, phenomena that peripheral portions of the substrates 62, 63 are
5 bent due to a difference of the atmospheric pressure between inside and outside of a sealant 61 of the liquid crystal display element 60, irregularity of the gap is occurred, and the quality of display is significantly lowered, can be solved.

According to the manufacturing method, as in the first embodiment, in sealing the liquid crystal by means of a dropping method, the vacuum space does
10 not remain in the liquid crystal cell and the liquid crystal 17 is uniformly spread in the liquid crystal cell, thereby improving the quality of display of the liquid crystal display element 10 and thus, enabling the sealing of the liquid crystal by means of the dropping method to be realized. When the sealant 56 is cured, since a pressure of an outside of the sealant 56 may be greatly increased as compared
15 with an area of the sealant 56, a flexion is not happened in the liquid crystal cell regardless of a difference of the pressure between inside and outside of the sealant 56, and can solve the irregularity of the gap around the periphery of the liquid crystal cell which has been caused in the prior art. Accordingly, a uniform gap can be obtained over the entire surface of a liquid crystal display element 58 and thus,

improve a quality of display of a liquid crystal display element.

The present invention is not limited to the embodiments described above, and various modifications may be effected without departing from the scope of the invention. For example, the present invention is applicable to any method by
5 which a liquid crystal can be dropped and applied in a state of a thin film on a display area, any thickness of a liquid crystal may be suitably selected if a required amount of the liquid crystal can be obtained, and a degree of vacuum in a vacuum chamber during an assembling process may be also suitably selected as required. Further, a sealant is not limited to those cured by an ultraviolet irradiation, and may
10 be selected variously from those cured by a heat, an ultraviolet irradiation and/or both of them.

Furthermore, the present invention is applicable to any of construction of the liquid crystal display element, a color filter layer may be formed on an array substrate and an opposing substrate, or a column spacer 67 may be formed on the
15 array substrate 66 as in a modified embodiment shown in Fig. 9 to maintain a gap between the array substrate and the opposing substrate 68 with a desired width thereof. Further, any number of surfaces of the liquid crystal display element formed simultaneously on the mother glass substrate is also selectable.

[Effect of the Invention]

As described above, according to the present invention, in a method for sealing a liquid crystal according to the dropping method that is capable of reducing a time of manufacture, the present invention can prevent a vacuum space from remaining in a liquid crystal cell after sealing of a liquid crystal and fill a liquid
5 crystal uniformly on an overall surface of a liquid crystal cell thereby improving a quality of display of a liquid crystal display element and it is possible to seal a liquid crystal by a dropping method.

[Description of Drawings]

Fig. 1 is an exploded schematic illustration showing a method for sealing a liquid crystal according to a first embodiment of the present invention.

Fig. 2 is a schematic illustration showing a liquid crystal display element of
5 the first embodiment of the present invention.

Fig. 3 is a schematic structural illustration showing a slit squeegee device of the first embodiment of the present invention.

Fig. 4 is a schematic structural illustration showing an assembling apparatus of the first embodiment of the present invention.

10 Fig. 5 is a schematic structural illustration showing a liquid crystal applying head of a second embodiment of the present invention.

Fig. 6 is an exploded schematic illustration showing a liquid crystal display element on a mother glass substrate of a third embodiment of the present invention.

Fig. 7 is a schematic structural illustration showing an assembling
15 apparatus of the third embodiment of the present invention.

Fig. 8 is a schematic illustration showing a flexion phenomenon of a plate glass substrate happened in a prior art in the third embodiment of the present

invention.

Fig. 9 is a schematic illustration showing a liquid crystal display element of a modified embodiment of the present invention.

Fig. 10 is an exploded schematic illustration showing a method for sealing
5 a liquid crystal according to a dropping method of a prior art.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-330840

(P2001-330840A)

(43) 公開日 平成13年11月30日 (2001.11.30)

(51) Int.Cl. ⁷	識別番号	F I	ターム(参考)
G 0 2 F 1/1341		C 0 2 F 1/1341	2 H 0 8 9
1/1339	5 0 5	1/1339	5 0 5

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2000-146429 (P2000-146429)

(22) 出願日 平成12年5月18日 (2000.5.18)

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

東京都港区芝浦一丁目1番1号

(72) 発明者 荻野 商明

兵庫県姫路市余部区上余部50番地 株式会
社東芝姫路工場内

(72) 発明者 高瀬 剛

兵庫県姫路市余部区上余部50番地 株式会
社東芝姫路工場内

(74) 代理人 100081732

弁理士 大胡 典夫 (外2名)

Fターム(参考) 21089 LA07 LA09 MA05Y MA07Y

NA14 NA22 NA32 NA39 QA12

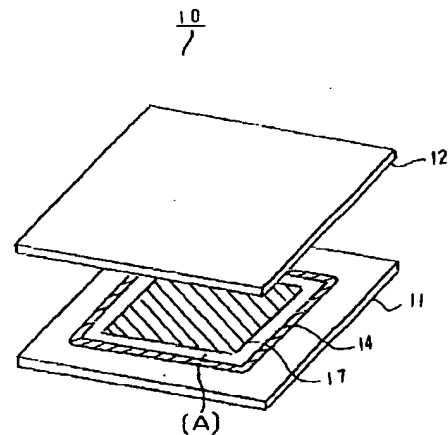
QA16

(54) 【発明の名称】 液晶表示素子の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 滴下法による液晶の封入工程において、液晶が均等に広がらずに液晶セル内に真空空間が残留するのを防止し、液晶表示素子の表示品位向上を図る。

【解決手段】 アレイ基板11にシール剤14を塗布し、次いでスリットスキージ装置25によりシール剤14に囲われる画素エリア[A]内に液晶17を薄膜状に滴下塗布する。そして減圧下でアレイ基板11及び対向基板12を貼り合わせ、その後大気中に戻して、液晶17を、液晶セル内に真空空間を残留する事無く均一に封入する。



10 : 液晶表示素子 11 : アレイ基板 12 対向基板
14 : シール剤 17 : 液晶

【特許請求の範囲】

【請求項1】 対向配置される一对の基板のどちらか一方に液晶を封止するためのシール剤を塗布する第1の工程と、
前記一对の基板のどちらか一方であって前記シール剤に囲まれる領域内に前記液晶を薄膜状に滴下する第2の工程と、
この第2の工程終了後、前記一对の基板を減圧下で所定の間隙を保持するよう前記シール剤にて貼り合わせる第3の工程と、
この第3の工程終了後、前記シール剤を硬化させる第4の工程とを具備することを特徴とする液晶表示素子の製造方法。

【請求項2】 前記第2の工程を、インクジェット方式の塗布装置を用いて行う事の特徴とする請求項1に記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項3】 前記第2の工程を、スリット状の溝が設けられるスキージ状の塗布装置を用いて行う事の特徴とする請求項1に記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項4】 前記第2の工程における薄膜状に塗布する前記液晶の塗布量は、(既定の液晶塗布量)±3%である事の特徴とする請求項1乃至請求項3のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項5】 前記第2の工程における薄膜状に塗布する前記液晶の塗布範囲は、前記シール剤の内法から所定幅均等に離間している事の特徴とする請求項1乃至請求項4のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項6】 前記第1の工程で塗布する前記シール剤が紫外線硬化型のシール剤である事の特徴とする請求項1乃至請求項5のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項7】 前記第1の工程で塗布する前記シール剤が熱硬化型のシール剤である事の特徴とする請求項1乃至請求項5のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項8】 前記第1の工程で塗布する前記シール剤が紫外線硬化及び熱硬化の両方を必要とするシール剤である事の特徴とする請求項1乃至請求項5のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項9】 前記第3の工程における前記所定の間隙は、前記一对の基板間に散布される球状スペーサにより保持される事の特徴とする請求項1乃至請求項8のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【請求項10】 前記第3の工程における前記所定の間隙は、前記一对の基板のいずれかにフォトリソグラフィ工程を用いて形成される柱状スペーサにより保持される事の特徴とする請求項1乃至請求項8のいずれかに記載の液晶表示素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、液晶表示素子の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】電極を有する一对の基板間に液晶を封入して成る液晶表示素子においては、従来液晶を封入する方法として、基板対をシール剤により貼り合わせ液晶セルを組み立てた後、シール剤に形成される注入口から液晶を注入し更に接着剤等で注入口を封止する注入法、あるいは図10に示すようにいずれか一方の基板1にシール剤にて注入口を有しないシールパターン2を形成し、シール剤で囲まれる領域に所定量の液晶3を水滴状に滴下した後、液晶セル内に気泡が残らないよう減圧下にてもう一方の基板4とスペーサを介して貼り合わせ、その後シールパターン2を硬化する滴下法が適用されていた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】前記注入法においては、基板を貼り合わせ液晶セルを形成した後、狭い注入口から液晶を注入するため、シール剤の硬化から液晶の注入完了に至るまでに極めて長時間を要し、生産性に著しく劣ると言う問題を有していた。又、液晶注入後に封止材により注入口を封止しているため注入口近傍の液晶表示素子内に特異点を生じ、これが白ズミの原因になり表示品位を低下するという問題も生じていた。更に、封止材の接着性が悪い場合には剥がれを生じたり、あるいは封止時に気泡を生じ易いという問題も有していた。

【0004】このため近年、滴下法による液晶の封入方法が検討されている。この滴下法は、その製造工程にて基板の一方に液晶を水滴状に滴下した後、もう一方の基板と対向配置し真空環境下で両基板を貼り合わせ、その後大気圧環境に戻すものである。この結果、液晶セル内外の圧力差により水滴状に滴下した液晶が液晶セル内に押し広げられ、隣り合った液晶が接触され、真空の空間を液晶により埋めることにより液晶セル内に液晶を均一に封入するものである。

【0005】しかしながら、一般に滴下法においては、真空環境下から大気圧環境下に戻した瞬間は液晶セル内外の圧力差が大きいため液晶が勢いよく広がるものの、広がった液晶によって液晶セル内の真空空間が埋められていくと、真空であった液晶セル内の容積が減少して液晶セル内の真空度が低くなり、大気圧との圧力差が小さくなる事から液晶が押し広げられる力が次第に弱くなる。そのため隣り合う滴下された液晶が接触する最も遠い点まで液晶が広がらずに真空空間が残留するという現象を来し表示不良空間を生じてしまい、均一で良好な表示品位を得られないという問題を生じていた。

【0006】そこで本発明は上記課題を除去するもので、滴下法での液晶封入時に、液晶セル内に、液晶が存在しない真空空間を残留してしまう事がなく、表示エリア全面にわたり均一で良好な表示品位を得られることに

より、製造時間の短縮を図る滴下法での液晶の封入工程を実現可能にする液晶表示素子の製造方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は上記課題を解決するための手段として、対向配置される一対の基板のどちらか一方に液晶を封止するためのシール剤を塗布する第1の工程と、前記一対の基板のどちらか一方であって前記シール剤に囲まれる領域内に前記液晶を薄膜状に滴下する第2の工程と、この第2の工程終了後、前記一対の基板を減圧下で所定の間隔を保持するよう前記シール剤にて貼り合わせる第3の工程と、この第3の工程終了後、前記シール剤を硬化させる第4の工程とを実施するものである。

【0008】このような構成により本発明は、液晶封入時に液晶セル内に真空空間を残留する事無く良好な表示品位を得られ、滴下法での液晶の封入を実現可能にし、液晶表示素子の製造時間を短縮し、その生産性向上を図るものである。

【0009】

【発明の実施の形態】以下本発明を、図1乃至図4に示す第1の実施の形態を参照して説明する。10は液晶表示素子であり、ガラス基板上に画素電極（図示せず）、対向電極（図示せず）をそれぞれ設けてなるアレイ基板11及び対向基板12は、その上に配置される配向膜13をそれぞれラビング処理後、例えば紫外線硬化型樹脂等からなるシール剤14にて、スペーサ16により所定のギャップを隔てて貼り合され、シール剤14に囲繞される領域に液晶17が封入されて成っている。

【0010】次に液晶表示素子10の製造方法について述べる。例えば画素電極を有する画素エリア[A]が13.3インチのアレイ基板11と対向電極を有する対向基板12を形成後、夫々に例えばポリイミドを塗布し更に約250℃で30分の熱処理を行い膜厚1000オングストロームの配向膜13を焼成し、冷却後ラビング布等で所定方向にラビング処理する。

【0011】そして基板の内どちらか一方、例えばアレイ基板11に塗布断面積が約5000～10000 μm^2 の範囲で画素エリア[A]を囲うようにアクリル等からなる紫外線硬化型のシール剤14を例えばシリンジで塗布し、棒状の堰を形成する。他方対向基板12にはアレイ基板11及び対向基板12の間隔を所定の一定のギャップ幅に保持するための例えば $\phi 5\mu\text{m}$ のスペーサ16を200個数/ mm^2 散布する。

【0012】次にアレイ基板11のシール剤14にて囲まれた画素エリア[A]内に、液晶17を薄膜状に滴下塗布する。この液晶17の滴下塗布は、例えば図3に示すスリットスキージ装置25によりスリット（図示せず）を設けたスキージ26を用いて行う。スキージ26はスリット幅180mmでオリフィス27の幅10 μm

で実施した。液晶導入口28から液晶17を一定の圧力にて印加し、アレイ基板11とスキージ26の下端との間隔をギャップセンサ30にて測定し、アレイ基板11とスキージ26の下端との間隔が一定となるように制御する。

【0013】液晶17滴下時、アレイ基板11を図示しないXYステージ上に設置し、スキージ26からの液晶吐出レート0.03 cm^3/sec 、XYステージの走査速度2 cm/sec に設定し液晶の吐出を実施した。結果、アレイ基板11に滴下される液晶17の膜厚は約6.6 μm とされる。薄膜状の液晶17の膜厚の精度は約 $\pm 2\%$ の精度であった。

【0014】滴下塗布する液晶17の総量は画素エリア[A]の面積と液晶セルを構成するアレイ基板11及び対向基板12間のギャップにより決定される。例えば画素エリア[A]が13.3インチで両基板11、12の間隔が5 μm である時の液晶17を塗布する総量の目標値は約280mlである。この際実際に滴下される液晶の総量は目標値の $\pm 3\%$ 以内が理想とされる。

【0015】もし実際に滴下される液晶の総量が目標値より3%以上多いと、アレイ基板11及び対向基板12を真空中にて貼り合わせ大気圧に戻した後、両基板11、12間を所定のギャップにするために加圧する際に、スペーサ16の高さに達する前にシール剤14に囲われた液晶セルの内部に液晶17が満たされてしまう。そしてシール剤14が硬化前であるために、液晶17がシール剤14にて形成した堰を決壊して液晶セルの外部にあふれ出てしまう。このためシール剤14を硬化した際、液晶17があふれ出した部分の接着不良により液晶セルの組み立て強度が著しく損なわれ信頼性を損なってしまう。

【0016】他方実際に滴下される液晶の総量が目標値より3%以上少ないと、アレイ基板11及び対向基板12を真空中にて貼り合わせ大気圧に戻した後、両基板11、12間を所定のギャップにするために加圧する際に、シール剤14に囲われた液晶セルの内部の真空空間を埋めるだけの液晶が足りなくなってしまう、その結果、最終的に完成された液晶表示素子10の画素エリア[A]にて両基板11、12間に液晶17の満たされない真空空間が残留し、著しい表示不良を生じてしまった。

【0017】更に薄膜状に滴下塗布する液晶17の周辺部分では、端部の膜厚が安定せず、なだらかに膜が切れるため、液晶17はアレイ基板11上に形成されたシール剤14より約10mm離れたところに端部が来るように薄膜状の滴下塗布を実施した。

【0018】この結果液晶17の薄膜の厚みは約6.6 μm 、薄膜のサイズは縦約183mm、横約230mmであった。

【0019】この様にアレイ基板11に液晶17を薄膜

状に滴下する一方、対向基板12にスペーサ16を散布した状態で組み立て装置40により両基板11、12を貼り合せ液晶表示素子10を組立てる。即ち1 Torrの真空槽41内でアレイ基板11をXYZ方向に調整可能な下ステージ42に真空吸着する一方、対向基板12をXYZ方向に調整可能な上ステージ43に真空吸着し、両基板11、12を離間した状態で上下ステージ42、43を移動して位置合わせを行う。次いで両基板11、12を40 kgfの圧力で加圧し、両基板11、12の貼り合わせを行う。

【0020】この後貼り合わせを実施した両基板11、12を大気中に戻すと液晶セル内外の圧力差によって液晶17が広がり液晶セル内の真空空間を埋める。次いで両基板11、12間を所定の5 μ mのギャップ幅にするように約300 kgfにて加圧し、シール剤14を硬化させるために下ステージ42に内蔵される紫外線照射ランプ42aにより紫外線を約3000 mJ/cm²照射してシール剤14を硬化させて液晶表示素子10を完成する。

【0021】このような製造方法によれば、滴下法による液晶封入時、減圧下でアレイ基板11及び対向基板12を貼り合わせた後に大気圧に戻した時、液晶セル内に真空空間が残留する事が無く、液晶17は液晶セル内で均一に広がり、良好な表示品位の液晶表示素子10を得られる。従って滴下法での液晶の封入を実現可能にし液晶表示素子の製造時間の短縮による生産性向上を図る。

【0022】次に本発明を、図5に示す第2の実施の形態を参照して説明する。この第2の実施の形態は、第1の実施の形態において、アレイ基板への液晶の滴下をインクジェット方式で行うものであり、他は第1の実施の形態と同一であることから同一部分については同一符号を付しその説明を省略する。

【0023】本実施の形態にあつては、アレイ基板11のシール剤14にて囲まれた画素エリア[A]内への液晶17の薄膜状の滴下塗布は、図5に示すインクジェット方式の液晶塗布ヘッド18を用いて行う。液晶塗布ヘッド18はノズルブロック20内にピエゾ素子21を板バネ状のスプリング22にて上部に固定した形となっている。ノズルブロック20内のスプリング22の下空間に液晶導入口23より液晶17を注入し、ピエゾ素子21を振動させることによりノズル口24より液晶17を吐出させる構造となっている。

【0024】今回使用した液晶塗布ヘッド18は、例えばノズル口の径が50 μ mであり、これが200 μ mピッチにて70個並んだ、塗布幅が約1.4 mmとされている。この液晶塗布ヘッド18のピエゾ素子21に電圧を1000 mV印可し、50 Hzの周波数を印可することにより液晶17は噴霧状に吐出する事が出来る。液晶17滴下時、シール剤14を塗布されたアレイ基板11を図示しないXYステージ上に設置し、XYステージを走

査させながら、液晶塗布ヘッド18から液晶17を噴霧し、アレイ基板11上に液晶17を薄膜状に滴下塗布して行く。この時のXYステージの走査速度を例えば50 mm/secとすると、アレイ基板11に滴下される液晶17の膜厚は約6.7 μ mとされ所望の液晶17の滴下量を得られる。

【0025】そして第1の実施の形態と同様、組み立て装置40により1 Torrの真空槽41内でアレイ基板11と対向基板12を40 kgfの圧力で加圧して貼り合わせ、この後両基板11、12を大気中に戻すと、液晶セル内外の圧力差によって液晶17は真空空間を残留する事無く液晶セル内に広がる。次いで両基板11、12を300 kgfの圧力で加圧し、紫外線を約3000 mJ/cm²照射してシール剤14を硬化させて液晶表示素子10を完成する。

【0026】このような製造方法によれば、第1の実施の形態と同様、滴下法による液晶封入時、液晶セル内に真空空間が残留する事が無く、液晶17は液晶セル内で均一に広がり、良好な表示品位の液晶表示素子10を得られ、滴下法での液晶の封入が実現可能となる。

【0027】次に本発明を、図6乃至図8に示す第3の実施の形態を参照して説明する。この第3の実施の形態は、第1の実施の形態において、マザーガラス基板に2面分のアレイ基板及び対向基板を形成しそれらの貼り合わせを行う。且つアレイ基板及び対向基板を貼り合わせる時に、基板の同一平面に異なる複数の圧力を同時に加えるものである。他は第1の実施の形態と同一であることから同一部分については同一符号を付しその説明を省略する。

【0028】本実施の形態にあつては、例えば300×300×0.7 mmのマザーガラス基板51上に、成膜技術及びフォトリソグラフィ技術を繰り返して、320×240ドットのマトリクス状の画素電極(図示せず)を有するアレイ基板52を2面形成する一方、300×300×0.7 mmのマザーガラス基板53上に、平面状の対向電極(図示せず)を有する対向基板54を2面形成する。更にアレイ基板52及び対向基板54に例えばポリイミドを塗布し更に約250℃で30分の熱処理を行い膜厚1000オングストロームの配向膜(図示せず)を焼成し、冷却後ラビング処理する。

【0029】そして基板の内どちらか一方、例えばアレイ基板52に、画素エリア[B]を囲うように例えばアクリルからなる紫外線硬化型のシール剤56を例えばシリンジで塗布して枠状の堰を形成する。他方対向基板54にはアレイ基板52及び対向基板54の間隔を所定の一定のギャップ幅に保持するための例えば幅5 μ mのスペーサ16を200個数/mm²散布する。

【0030】次に第1の実施の形態と同様スキージ26を用いて、アレイ基板52のシール剤56に囲まれた画素エリア[B]内に、液晶57を膜厚約6.6 μ mの薄

膜状に滴下塗布する。一方、対向基板12にスペーサ（図示せず）を散布した状態で図7に示す組み立て装置31により両マザーガラス基板51、53を貼り合せシール剤56を硬化後1面づつに切り離して液晶表示素子58を組み立てる。

【0031】組み立て装置31は、真空槽32内にXYZ方向に調整可能でありマザーガラス基板51を真空吸着する下ステージ33及びXYZ方向に調整可能でありマザーガラス基板53を真空吸着する上ステージ34を有している。下ステージ33内には紫外線照射ランプ36が内蔵されている。

【0032】上ステージ34は、シール剤56に対応する領域を加圧する第1枠加圧ステージ37及びこの第1枠加圧ステージ37外周であってシール剤56の外側の領域を加圧する第2枠加圧ステージ38の二重枠構造となっていて、第1枠加圧ステージ37及び第2枠加圧ステージ38はそれぞれ異なる加圧力での加圧が可能とされる。これにより加圧時、マザーガラス基板51、53平面には、第1枠加圧ステージ37による加圧と、第2枠加圧ステージ38による加圧の複数の加圧が同時に加えられる様になっている。

【0033】そして液晶表示素子58の組み立て時、0.1 Torrの真空槽32内にてマザーガラス基板51を下ステージ33に真空吸着する一方、マザーガラス基板53を上ステージ34に真空吸着し、両基板51、53を離間した状態で上下ステージ33、34を移動して位置合わせを行う。次いで両基板51、53の貼り合わせを行いその後貼り合わせを実施した両基板51、53を大気中に戻すと液晶セル内外の圧力差によって液晶57が広がり液晶セル内の真空空間を埋める。

【0034】次いで、例えば、第1枠加圧ステージ37によりシール剤56領域を0.5 kg/cm²の圧力で加圧し、第2枠加圧ステージ38によりシール剤56の外側領域を1 kg/cm²の圧力で加圧し、且つ紫外線照射ランプ36により紫外線を2000 mJ/cm²照射して、シール剤56を硬化する。更に1面づつの液晶表示素子58とするようマザーガラス基板51、53を半分に切り離して液晶表示素子58を完成する。

【0035】この結果従来図8に示すように液晶表示素子60のシール剤61の内外の気圧差により基板62、63の周辺部が撓みギャップむらを生じて、表示品位を著しく低下させるという現象が解消された。

【0036】このような製造方法によれば、第1の実施の形態と同様、滴下法による液晶封入時、液晶セル内に真空空間が残留する事が無く、液晶17は液晶セル内で均一に広がり、液晶表示素子10の表示品位が向上され滴下法での液晶の封入が実現可能となる。しかもシール剤56の硬化時、シール剤56領域に比しシール剤56の外側領域の圧力を大きく出来る事から、シール剤56内外の気圧差にかかわらず液晶セルに撓みを生じる事が

なく、従来生じていた液晶セル周辺部のギャップむらを解消出来る。従って液晶表示素子58全面にわたり均一なギャップを得られ表示品位の向上を図れる。

【0037】尚本発明は上記実施の形態に限られるものでなく、その趣旨を変えない範囲での変更は可能であって、例えば表示領域に液晶を薄膜状に滴下塗布可能であればその方法は限定されないし、所定の液晶量を得られればその液晶の厚さも任意であるし、組み立て工程における真空槽内の真空度も必要に応じて任意である。又、シール剤も紫外線照射により硬化されるものに限らず、加熱により硬化される熱硬化型樹脂を用いたり、あるいは紫外線照射及び加熱の両方により硬化される紫外線・熱硬化型樹脂を用いる等してもよい。

【0038】更に液晶表示素子の構造も任意であり、アレイ基板あるいは対向基板にカラーフィルタ層を形成したり、あるいは図9に示す他の変形例のようにアレイ基板66上に柱状スペーサ67を形成して、対向基板68とのギャップを所望のギャップ幅に保持する等しても良い。又、マザーガラス基板上に同時に形成する液晶表示素子の面数も任意である。

【0039】

【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、製造時間を短縮可能な滴下法による液晶封入方法において、液晶封入後に液晶セル内に真空空間が残留するのを防止出来、液晶セル全面にわたり液晶を均一に充填出来、液晶表示素子の表示品位を向上出来、滴下法での液晶の封入を実現可能にする。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施の形態の液晶の封入方法を示す分散概略説明図である。

【図2】本発明の第1の実施の形態の液晶表示素子を示す概略説明図である。

【図3】本発明の第1の実施の形態のスリットスキージ装置を示す概略構成図である。

【図4】本発明の第1の実施の形態の組み立て装置を示す概略構成図である。

【図5】本発明の第2の実施の形態の液晶塗布ヘッドを示す概略構成図である。

【図6】本発明の第3の実施の形態のマザーガラス基板上の液晶表示素子を示す分散概略構成図である。

【図7】本発明の第3の実施の形態の組み立て装置を示す概略構成図である。

【図8】本発明の第3の実施の形態において従来技術で生じていたガラス基板の撓み現象を示す概略説明図である。

【図9】本発明の他の変形例の液晶表示素子を示す概略説明図である。

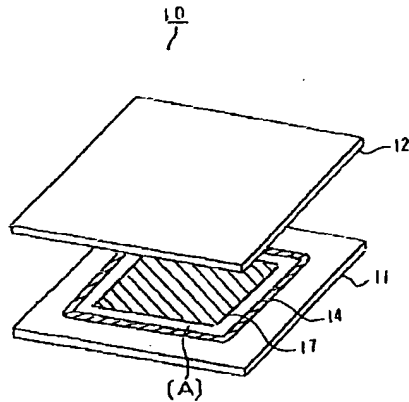
【図10】従来の滴下法による液晶の封入方法を示す分散概略説明図である。

【符号の説明】

- 10…液晶表示素子
- 11…アレイ基板
- 12…対向基板
- 13…配向膜
- 14…シール剤
- 16…スペーサ
- 17…液晶
- 18…液晶塗布ヘッド
- 20…ノズルブロック
- 21…ピエゾ素子
- 22…スプリング

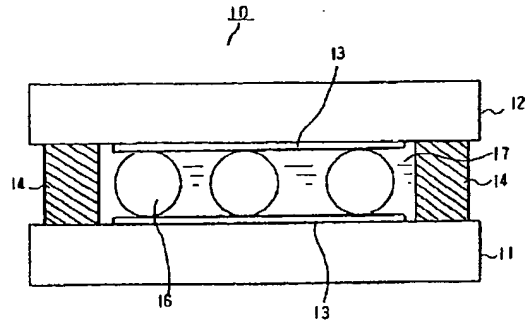
- 23…液晶導入口
- 24…ノズル口
- 25…スリットスキージ装置
- 26…スキージ
- 27…オリフィス
- 28…液晶導入口
- 30…ギャップセンサ
- 40…組み立て装置
- 41…真空槽
- 42…下ステージ
- 43…上ステージ

【図1】

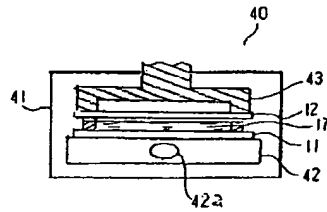


- 10: 液晶表示素子
- 11: アレイ基板
- 12: 対向基板
- 14: シール剤
- 17: 液晶

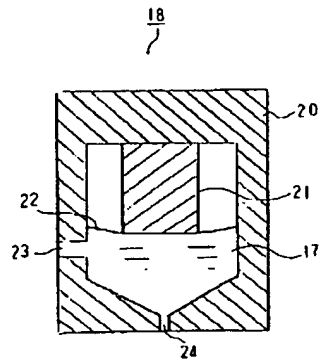
【図2】



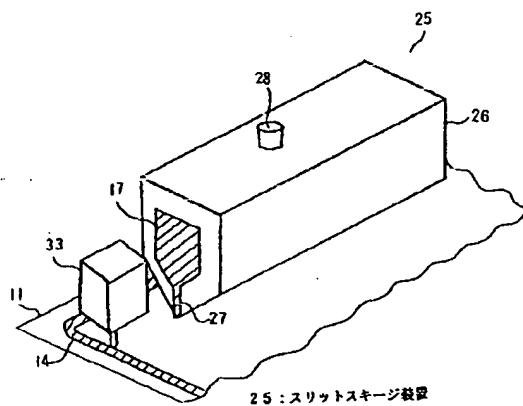
【図4】



【図5】

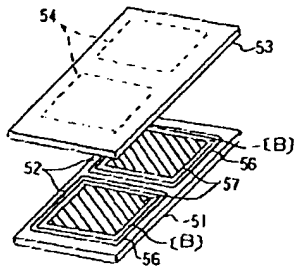


【図3】

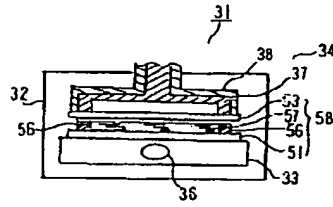


25: スリットスキージ装置

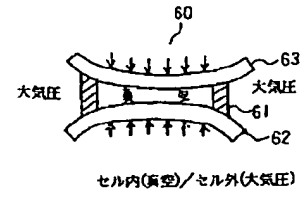
【図6】



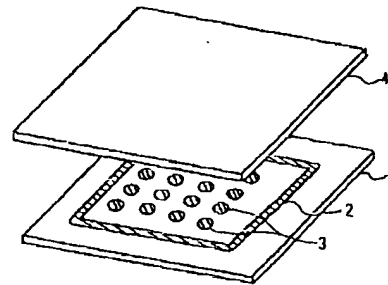
【図7】



【図8】



【図10】



【図9】

